

~~A13~~  
A13

## PATENT A STRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-279012  
(43)Date of publication of application : 26.10.1993

---

(51)Int. CI. C01 33/20  
01D 61/14

---

---

(21)Application number :	04-108418	(71)Applicant :	KOOPU CHEM KK
(22)Date of filing :	02.04.1992	(72)Inventor :	FURUSAWA TAKASHI FUJISAKI TOSHIKAZU HONMA KO SAIKI HIROSHI ANDO SEINOSUKE

---

### (54) PRODUCTION OF SYNTHETIC SWELLING SILICATE Y CROSS-FLOW FILTRATION

#### (57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a high-quality swelling silicate by economically and efficiently separating a colloid composite generated from a homogeneous liq. mixture of silicic acid and a magnesium salt and an alkaline soln. from the by-product solute under specified conditions by cross-flow filtration, cleaning and concentrating the composite.

CONSTITUTION: A colloid composite is prepared from a homogeneous liq. mixture of silicic acid and a magnesium salt or the liq. mixture further added with an aluminum salt and an alkaline soln. The composite is separated from the by-product solute, cleaned and concentrated, a cation and/or lithium ion or fluorine ion, as required, are added to obtain a slurry, and the slurry is subjected to a hydrothermal reaction at 100-350° C. The reaction product is dried and crushed to provide a synthetic swelling silicate. In this process, cross-flow filtration is used in separating, cleaning and concentrating the composite, and the Reynolds number is controlled to 50-5000.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]	29.01.1999
[Date of sending the examiner's decision of rejection]	
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]	
[Date of final disposal for application]	
[Patent number]	

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

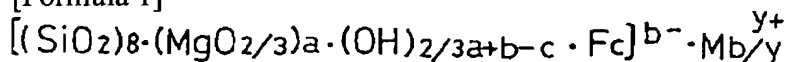
CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] In compounding the synthetic bloating tendency silicate which has structure similar to 3-octahedron mold smectite expressed with the following general formula (\*\* 1) The silicic acid and the homogeneity mixed solution of magnesium salt which have the silicon magnesium ratio which satisfies the presentation of this general formula, Silicon magnesium complex is made and the quality of the byproduction dissolution is removed from an alkali solution. This silicon magnesium complex Separation, after washing and condensing, Hydrothermal reaction is performed for the cation and the slurry which added and obtained fluorine ion when requiring of the amount with which are satisfied of the presentation of this general formula under conditions (100 degrees C thru/or 350 degrees C). Subsequently, a resultant is set to the manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate shown by this general formula dried and ground. The manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate characterized by carrying out by removing this quality of the byproduction dissolution, and setting up this silicon magnesium complex so that the Reynolds number may go into the range of 50-5000 using separation and the filtration approach [ in washing and condensing ] by the cross-flow method.

[Formula 1]



(Setting the value of a, b, c, and y in a formula to  $0 < a < 10$ ,  $0 < b \leq 1$ , and  $0 \leq c < 2/3 a + b$ , and  $1 \leq y \leq 2$ , M is at least one cation chosen from the group which consists of alkali-metal ion, alkaline-earth-metal ion, ammonium ion, and an amine).

[Claim 2] The manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate according to claim 1 characterized by controlling so that 95% or more of the mean particle diameter of this silicon magnesium complex is set to 200nm or less, and using the filtration membrane whose average pore size is 0.1-5 micrometers.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

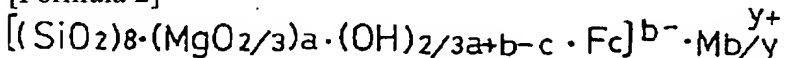
[Industrial Application] About the manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate of high quality, in more detail, since this invention has a thixotropy-property, it is set to manufacture of a synthetic bloating tendency silicate very useful as additives, such as cosmetics, drugs, and a coating. It washes and condenses. a silicic acid, the homogeneity mixed liquor of magnesium salt, and an ant cull solution to silicon magnesium complex (floc of a colloidal particle) -- making -- the quality of the byproduction dissolution -- removing -- this silicon magnesium complex -- efficient -- separation - It is related with the approach of manufacturing the synthetic bloating tendency silicate of high quality.

[0002]

[Description of the Prior Art] In compounding the synthetic bloating tendency silicate which has structure similar to 3-octahedron mold smectite expressed with the following general formula (\*\* 2) as a synthetic bloating tendency silicate and its manufacture approach The silicic acid and the homogeneity mixed solution of magnesium salt which have the silicon magnesium ratio which satisfies the presentation of this general formula, Silicon magnesium complex is made and the quality of the byproduction dissolution is removed from an alkali solution. This silicon magnesium complex Separation, after washing and condensing, Hydrothermal reaction is performed for the cation and the slurry which added and obtained fluorine ion when requiring of the amount with which are satisfied of the presentation of this general formula under conditions (100 degrees C thru/or 350 degrees C). Subsequently, the synthetic bloating tendency silicate shown by this general formula that dries and pulverizes a resultant, and its manufacture approach (JP,61-12848,B, JP,63-6485,B) are proposed.

[0003]

[Formula 2]



[0004] (Setting the value of a, b, c, and y in a formula to  $0 < a < 10$ ,  $0 < b \leq 1$ , and  $0 \leq c < 2/3 a + b$ , and  $1 \leq y \leq 2$ , M is at least one cation chosen from the group which consists of alkali-metal ion, alkaline-earth-metal ion, ammonium ion, and an amine) .

[0005] In order to manufacture a synthetic bloating tendency silicate by these approaches, it is very important from the top of the grace of the synthetic bloating tendency silicate of a product, and cost reduction separation and for it to be necessary to wash and condense and to remove the quality of the byproduction dissolution efficiently and nearly completely by filtering the silicon magnesium complex (floc of a colloidal particle) generated from the homogeneity mixed liquor and alkali solution of a silicic acid and magnesium salt from the quality of the byproduction dissolution. Moreover, it is required at the time of filtration to condense and to raise the concentration of silicon magnesium complex because of the miniaturization of the equipment in a back process, and cheap-izing of desiccation cost. It was condensing, and when pressurization or reduced pressure tended to separate silicon magnesium complex and a byproduction electrolyte using the ultrafiltration membrane currently generally used to filtration of a colloidal particle, after filtration, the colloidal particle of this silicon magnesium complex started blinding immediately, and filtration and washing become impossible as a matter of fact, and it needed to exchange the filtration membrane frequently.

[0006] If for the reason the path of the hole of a filtration membrane tends to be enlarged and it is going to

prevent blinding, even silicon magnesium complex will be filtered and the problem of separation of a byproduction electrolyte becoming impossible will arise. Then, in practice, although some loss will be disregarded, the filtration membrane or the aperture which can carry out uptake of the greater part of that aggregate will be used and filtration and washing will be performed since the colloidal particle is condensing silicon magnesium complex, blinding is started immediately even in this case, and the problem that filtration and a backwashing rate fall sharply arises. For this reason, an appearance of separation and the method of washing and condensing and manufacturing the synthetic bloating tendency silicate of high quality was desired economically and efficiently by filtering silicon magnesium complex from the quality of the byproduction dissolution.

[0007]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The purpose of this invention is offering separation and the method of washing and condensing and manufacturing the synthetic bloating tendency silicate of high quality economically and efficiently by solving the above-mentioned problem, and filtering the silicon magnesium complex generated from the homogeneity mixed liquor and alkali solution of a magnesium-silicate salt from the quality of the byproduction dissolution, without starting blinding.

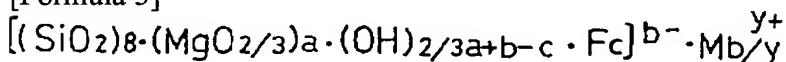
[0008]

[Means for Solving the Problem] As a result of this invention person's etc. inquiring wholeheartedly in view of the above-mentioned problem, are in charge of manufacturing a synthetic bloating tendency silicate by the above-mentioned approach. The silicon magnesium complex generated from the homogeneity mixed liquor and alkali solution of a silicic acid and magnesium salt Separation from the quality of the byproduction dissolution, when washing and condensing, By filtering under specific conditions using the filtration approach by the cross-flow method, it came to accomplish a header and this invention for the ability of separation, washing, and concentration to be performed efficient nearly completely.

[0009] In invention of claim 1 of this invention compounding the synthetic bloating tendency silicate which has structure similar to 3-octahedron mold smectite expressed with the following general formula (\*\* 3) The silicic acid and the homogeneity mixed solution of magnesium salt which have the silicon magnesium ratio which satisfies the presentation of this general formula, Silicon magnesium complex is made and the quality of the byproduction dissolution is removed from an alkali solution. This silicon magnesium complex Separation, after washing and condensing, Hydrothermal reaction is performed for the cation and the slurry which added and obtained fluorine ion when requiring of the amount with which are satisfied of the presentation of this general formula under conditions (100 degrees C thru/or 350 degrees C). Subsequently, a resultant is set to the manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate shown by this general formula dried and ground. It is the manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate characterized by carrying out by removing this quality of the byproduction dissolution, and setting up this silicon magnesium complex so that the Reynolds number may go into the range of 50-5000 using separation and the filtration approach [ in washing and condensing ] by the cross-flow method.

[0010]

[Formula 3]



[0011] (Setting the value of a, b, c, and y in a formula to  $0 < a < 10$ ,  $0 < b \leq 1$ , and  $0 \leq c < 2/3 a + b$ , and  $1 \leq y \leq 2$ , M is at least one cation chosen from the group which consists of alkali-metal ion, alkaline-earth-metal ion, ammonium ion, and an amine).

[0012] Invention of claim 2 of this invention is the manufacture approach of the synthetic bloating tendency silicate according to claim 1 characterized by controlling so that 95% or more of the mean particle diameter of this silicon magnesium complex is set to 200nm or less, and using the filtration membrane whose average pore size is 0.1-5 micrometers.

[0013] Next, the filtration approach by the cross-flow method used by this invention is explained in detail. The filtration approach by the above-mentioned cross-flow method is an approach of filtering by making the flow of the undiluted solution 2 for filtration carrying out in the direction which crosses filtrate 4 with an undiluted solution 2 with a sink through a filtration membrane 1 in parallel with the front face of a filtration membrane 1,

as the millipore filter showed the undiluted solution for filtration to drawing 1 and drawing 2 to the approach of generally being performed which carries out direct filtration. Drawing 1 is a cross-section explanatory view in case an undiluted solution 2 carries out the flow of the interior of the tubing-like filtration membrane 1 and filtrate 4 carries out a flow to the exterior, and drawing 2 is a cross-section explanatory view in case an undiluted solution 2 carries out the flow of the exterior of the tubing-like filtration membrane 1 and filtrate 4 carries out a flow inside. The colloidal particle 3 is contained in the undiluted solution 2. (A) of drawing 3 and (B) are the explanatory views showing the cross section of the filtration membrane made from a ceramic which is one example of a filtration membrane.

[0014] Drawing 4 is the explanatory view showing an example of the system of the filtration approach by the cross-flow method. An undiluted solution 2 is supplied to the undiluted solution tub 7 with the undiluted solution feed pump 6. Temperature, a pressure, and a flow rate are controlled by circulating-pump 6' via a heat exchanger 8, and the liquid is sent, and sequential filtration is carried out by a filtration membrane 1, 1', and 1'', and it circulates through an undiluted solution 2 from Rhine 9 to the undiluted solution tub 7, and this is repeated. The liquid is sent from Rhine 9' to filtrate receiver tank 7', and filtrate is sent to degree process by pump 6." Rhine 9" is a drain line. When separation of the quality of the byproduction dissolution and concentration of silicon magnesium complex progress, while supplying a penetrant remover 10 to the undiluted solution tub 7 and separating quality of the byproduction dissolution completely, water is separated and concentration of the water slurry of silicon magnesium complex is advanced. If separation, washing, and concentration of silicon magnesium complex are completed, concentration liquid 5 will be discharged out of a system. Moreover, a filtration membrane 1, 1', and since plugging of 1" is canceled, filtrate can be poured to the above and reverse and a back wash can also be given.

[0015] In case filtration and separation of silicon magnesium complex and the quality of the byproduction dissolution are performed by the filtration approach by the cross-flow method in this invention, it is important 50-5000, and that set up so that it may be desirably set to 1000-5000, and the Reynolds number performs filtration and separation. It prevented that the cake layer of silicon magnesium complex generated on a filtration membrane, the fall of filtration velocity was prevented, and while it repeated filtration / washing test that it is indispensable conditions to set the Reynolds number as a specific value to perform washing and concentration efficiently, it became clear. The Reynolds number cannot prevent that the cake layer of silicon magnesium complex generates on a filtration membrane less than by 50, but when the Reynolds number exceeds 5000, a setup of a filtration system becomes cost quantity difficultly. Moreover, if the concentration of silicon magnesium complex is lowered to the degree of pole, the Reynolds number can also be made or more into 5000, but although separation is good, from the point of concentration, it is uneconomical and is not desirable.

[0016] Although the reason with the effective filtration approach by the cross-flow method is considered as follows, naturally it is not what is limited to these ideas. The silicon magnesium complex (colloidal particle) generated from the homogeneity mixed liquor and cull potash solution of a silicic acid and magnesium salt is condensed, and in order to perform efficiently separation and washing of the quality of the byproduction dissolution which has entered the interior of an aggregate, it needs to break this aggregate smaller. On the other hand, in order to prevent the fall of filtration velocity, it is necessary to prevent that the silicon magnesium complex destroyed small accumulates on a filter, and to prevent that prevent that an adhesive aggregate generates on a filter and a filter carries out blinding. In order to solve such an opposite problem, by the filtration approach by the cross-flow method, the Reynolds number is preferably set as 1000 or more turbulent flow regions 50 or more, and it is judged to be a very effective thing to produce an eddy in a filtration interface. Although it is inferior in capacity when the Reynolds numbers are 50-1000, it is thought that the too same effectiveness is acquired.

[0017] However, when performing actual filtration and washing, it is desirable to lower to 1000 or less in the concentration phase after the Reynolds number carries out in the 1000 or more condition as much as possible and washing is completed mostly.

[0018] Moreover, in this invention, silicon magnesium complex is separated from the quality of the byproduction dissolution by the filtration approach by the cross-flow method as mentioned above. After washing and condensing, the slurry which added and obtained fluorine ion if needed [ of satisfying the presentation of said general formula / the cation and if needed ] for an amount Although the synthetic bloating tendency silicate shown by said general formula by performing hydrothermal reaction, and subsequently drying

and pulverizing a resultant under conditions (100 degrees C thru/or 350 degrees C) can be obtained In order to obtain the synthetic bloating tendency of high quality namely, in order to obtain a synthetic bloating tendency silicate as the transparency or dispersion liquid and viscosity which distributed the synthetic bloating tendency silicate underwater are high, distribute also in the water solution of inorganic or organic salt and hyperviscosity shown It controlled so that 95% or more of the particle diameter of silicon magnesium complex was set to 200nm or less, and it found out that it was more desirable than a silicic acid, said homogeneity mixed solution of magnesium salt, and an alkali solution to make silicon magnesium complex.

[0019] Moreover, in filtration according [ most ] to the cross-flow method of a colloidal particle with a particle diameter of 200nm or less, although the optimum value changed with values of the magnitude of a colloidal particle, or the state of aggregation and the Reynolds number at the time of filtration in the pore size of a filtration membrane, it filtered with economical filtration velocity and it turned out that it is desirable to limit the pore size to the range of 0.1-5 micrometers in order to lessen loss of the colloidal particle at the time of filtration.

[0020]

[Example] Next, although an example explains this invention to a detail further, unless it deviates from the main point of this invention, it is not limited to an example.

(An example 1, examples 1-2 of a comparison) (separation, washing, and concentration of the silicon magnesium complex using the filtration approach by the cross-flow method)

4l. of water was put into the 10l. beaker, 860g (SiO<sub>2</sub> 28%, Na<sub>2</sub> 0.9%, mole ratio 3.22) of No. 3 water glass was dissolved, and in addition, the silicic-acid solution was obtained at once, stirring 250ml of 12 convention solution of hydrochloric acid. Next, it was dropped in 5 minutes, stirring the magnesium silicate salt homogeneity solution which added and adjusted the solution which dissolved 550g (98% of purity) of magnesium chloride 6 hydrate first class grade chemicals in 1l. of water to the silicic-acid solution in 3.8l. of 2 convention sodium-hydroxide solutions. The slurry solution which carries out fixed time amount stirring and consists of silicon magnesium complex (90% or more of particle diameter is 500nm or less) and the quality of the byproduction dissolution was made, and filtration / washing test was performed using it. The diameter of average floc was measured after filtration / washing. In addition, in filtration / washing test, the slurry solution of silicon magnesium complex used 1-10kg, and the pure water for washing used the amount the 5 times.

[0021] The system [a cross-flow-filtration machine (a ceramic millipore filter, a tubular type, and filtration area 400cm<sup>2</sup>)] of NGK Insulators, Ltd. shown in drawing 4 was used for the filtration system by the cross-flow method using the ceramic millipore filter shown in drawing 3. A result is shown in Table 1.

[0022]

[Table 1]

濾過法	フィルター	濾過方法	濾過・洗浄速度 (l/m <sup>2</sup> h r)	平均凝集粒径 (μm)
自然濾過法 比較例 1	濾布 (テトロン1310) (孔径 2 μm)	溶液の自重	2	50
加圧濾過法 比較例 2	濾布 (テトロン1310) (孔径 2 μm)	加圧 (2 kg/cm <sup>2</sup> )	9	50
本発明法 実施例 1	孔径 2 μm のセラミック フィルター	クロスフロー (一種の加圧濾過)	100	5

[0023] In the natural filtration process of the example 1 of a comparison, it filtered with a self-weight using the funnel with a diameter of 20cm and filter cloth made from Dacron. By the pressure filtration method of the example 2 of a comparison, it filtered by pressurizing using KS mold pressure filter (filtration area 130cm<sup>2</sup>) and the filter cloth made from Dacron made from Mitsunobu Physicochemistry. In the example 1 by this invention method, it carried out by [ as setting the Reynolds number to 1000-5000 as much as possible ] at the time of filtration and washing. It turns out that the pressure filtration method of the natural filtration process of the example 1 of a comparison and the example 2 of a comparison is set to 5 micrometers and 1/10 in the example 1 to average condensation particle size being 50 micrometers, and the aggregate is destroyed from Table 1, and that filtration velocity is quick 10 or more times compared with other methods.

[0024] The following value was acquired when the electrical conductivity (mS/cm) of 10% solution of pure water of the silicon magnesium complex after washing was measured.  
Example 1 of a comparison Natural filtration process Example 2 of 5.76 comparisons Pressure filtration method 4.05 examples 1 This invention method Since it is thought that 0.57 electrical conductivity is proportional to the nature concentration of the byproduction dissolution contained in silicon magnesium complex mostly, In order to break an aggregate small and to perform filtration and washing from the above-mentioned result according to the approach of this invention, in spite of removing extremely the quality of the byproduction dissolution built in the aggregate of silicon magnesium complex and being that of a backlash potato The content of the quality of the byproduction dissolution becomes less, and it can be judged as that to which single figure electrical conductivity became low. Thus, according to the approach of this invention, electrical conductivity is low, and since in other words silicon magnesium complex with few nature contents of the byproduction dissolution can be obtained consequently, it is thought that the bloating tendency silicate of high quality with high purity is obtained.

[0025] (Example 2) (separation, washing, and concentration of the silicon magnesium complex using the filtration approach by the cross-flow method)  
Although silicon MAGUNESHIU complex was made by the same approach as an example 1, at that time, reaction temperature, reaction time, agitating speed, etc. were adjusted, and it adjusted so that 95% or more of a particle might be set to 200nm or less. Separation / washing test from the quality of the byproduction dissolution of the obtained silicon MAGUNESHIU complex was performed on the same conditions as an example 1. The diameter of average floc was measured after filtration / washing. A result is shown in Table 2.

[0026]  
[Table 2]

濾過法	フィルター	濾過方法	濾過速度 (l / m <sup>2</sup> h r)	平均凝集粒子径 (μm)
本発明法 実施例 2	孔径 1 μm のセラミック フィルター	クロスフロー (一種の加圧濾過)	8 5	3

[0027] (Examples 3-4, examples 3-4 of a comparison) (manufacture and its physical-properties value of a bloating tendency silicate)  
20ml of water solutions which dissolved 3g of sodium hydroxides for 1080g of silicon magnesium complex obtained in examples 1 and 2 and the examples 1 and 2 of a comparison filtration and after fully rinsing is added, and it considers as the shape of a slurry, and it moved to the autoclave and hydrothermal reaction was carried out at 41kg/cm<sup>2</sup> and 250 degrees C for 3 hours. After taking out the reactant after cooling and drying at 80 degrees C, the grinding machine ground and the sample of the bloating tendency silicate for physical-properties measurement was obtained. The viscosity (cp) of (%) and the permeability by light with a wavelength of 500nm, and 2% solution of this pure water, (the measured value of a Brookfield viscometer and 60 revolutions per minute), cation exchange capacity (mg equivalent / 100g), and pH of 1% solution of this pure water were measured using 1% solution of pure water of a bloating tendency silicate. A result is collectively shown in Table 3.



[0028]

[Table 3]

	光透過率 (%) 純水 1 % 溶液 波長 500 nm	粘度 (c p) 純水 2 % 溶液	陽イオン交換容量 mg 当量 / 100 g	pH 純水 1 % 溶液
自然濾過法品 比較例 3	56.9	$1.6 \times 10^2$	97	10.3
加圧濾過法品 比較例 4	67.1	$2.2 \times 10^2$	98	10.4
本発明濾過品 実施例 3	94.9	$9.0 \times 10^2$	101	10.5
本発明濾過品 実施例 4	97.2	$17.5 \times 10^2$	101	10.5

[0029] The bloating tendency silicate (examples 3 and 4) made from the result shown in Table 3 using the silicon magnesium complex obtained in the examples 1 and 2 about the permeability and viscosity which are the important physical properties of a bloating tendency silicate shows a high value as compared with the bloating tendency silicate (examples 3 and 4 of a comparison) made using the silicon magnesium complex obtained in the examples 1 and 2 of a comparison. And when 95% or more of particle size of silicon MAGUNESHIU complex is controlled to 200nm or less like an example 2, the light transmittance of the bloating tendency silicate (example 4) made using it becomes 95% or more which is one target of high quality, and it turns out that viscosity also increases twice [ about ].

[0030] (Examples 5-6, examples 5-6 of a comparison) (physical-properties value of a bloating tendency silicate)

2% water solution of the bloating tendency silicate sample for physical-properties measurement obtained in examples 3 and 4 and the examples 3 and 4 of a comparison -- adjusting -- there -- inorganic or organic salt -- 0.5 or 2% considerable-amount addition -- carrying out -- a stirrer -- large -- it mixed and the solution for measurement of viscosity was adjusted. When the homogeneous high viscosity liquid which is not divided into a bilayer was obtained, viscosity (cp) and (the measured value of a Brookfield viscometer and 60 revolutions per minute) were measured. A result is collectively shown in Table 4. Bilayer separation is not carried out, but in the case of the bloating tendency silicate obtained in the examples 3 and 4 (an example 5 and example 6), homogeneous high viscosity liquid is produced, and as for the bloating tendency silicate made using it, Table 4 shows what dispersibility becomes very good (example 6), when 95% or more of particle size of silicon magnesium complex is moreover controlled to 200nm or less like an example 2. In the case of the bloating tendency silicate obtained in the examples 3 and 4 of a comparison, it separated into the bilayer, and homogeneous high viscosity liquid was not obtained (the example 5 of a comparison, and example 6 of a comparison).

[0031] Thus, the physical properties which distribute in the water solution of inorganic or organic salt, do not carry out bilayer separation but produce homogeneous high viscosity liquid are very important physical properties when applying a bloating tendency silicate to cosmetics, drugs, a coating, etc. as an additive which gives a thixotropy-property. In addition, although the property which it distributes also in the water solution of inorganic [ above ] or organic salt, and shows high viscosity had some which are partly accepted also in a commercial synthetic bloating tendency silicate, otherwise, what has large dispersibility was not seen like the bloating tendency silicate manufactured by the approach of this invention.



[0032]

[Table 4]

種 類	濃 度 (%)	自然濾過法品 比較例 5	加圧濾過法品 比較例 6	本發明濾過品 実施例 5	本發明濾過品 実施例 6
塩化ナトリウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	1,700 880	1,800 890
塩化カリウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	2,100 二層分離	2,200 840
塩化アンモニウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	490 二層分離	320 460
硫酸アンモニウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	760 460	1,300 580
EDTA-2Na	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	740 二層分離	680 550

[0033]

[Effect of the Invention] In manufacturing a synthetic bloating tendency silicate, this invention the silicon magnesium complex generated from the homogeneity mixed liquor and alkali solution of a silicic acid and magnesium salt Separation from the quality of the byproduction dissolution, when washing and condensing, If it carries out by setting up so that the Reynolds number may go into the range of 50-5000 by the filtration approach by the cross-flow method It can filter without starting the blinding of a filtration membrane, separation, washing, and concentration of silicon magnesium complex can be performed economically and efficiently, and the synthetic bloating tendency silicate of high quality can be manufactured. Furthermore, if 95% or more of the particle diameter of silicon magnesium complex is controlled to be set to 200nm or less, the pore size of a filtration membrane is limited to 0.1-5 micrometers and separation, washing, and concentration of

silicon magnesium complex are performed, separation, washing, and concentration of silicon magnesium complex can be performed much more economically and efficiently, and the synthetic bloating tendency silicate of high quality can be manufactured more. By the approach of this invention, the synthetic bloating tendency silicate of high quality very useful as an additive which gives a thixotropy-property can be cheaply manufactured to cosmetics, drugs, a coating, etc., and the utility value on industry is large.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

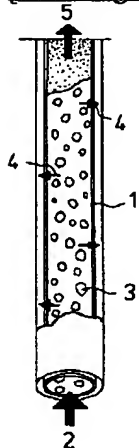
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

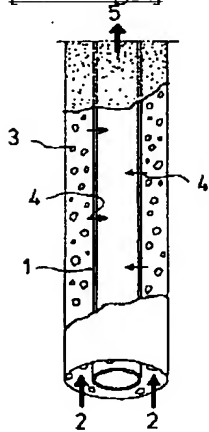
DRAWINGS

---

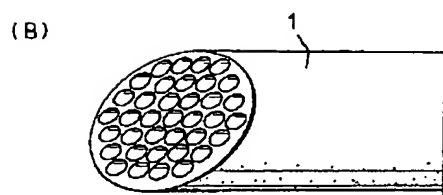
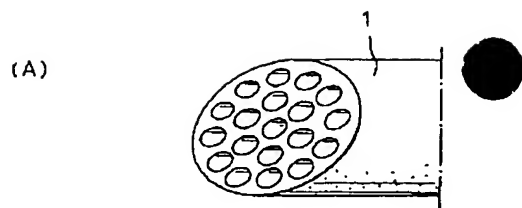
[Drawing 1]



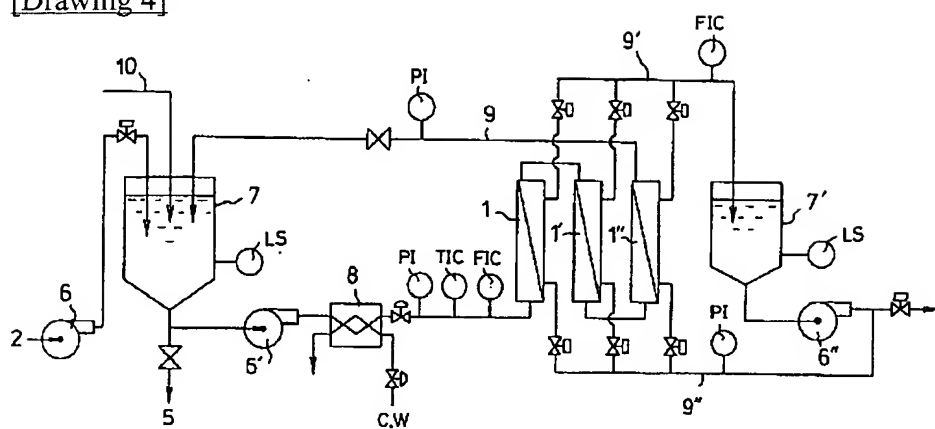
[Drawing 2]



[Drawing 3]



[Drawing 4]



[Translation done.]

~~A12~~ A12

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平5-279012

(43) 公開日 平成5年(1993)10月26日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 1 B 33/20		6750-4G		
B 0 1 D 61/14	5 0 0	8014-4D		

審査請求 未請求 請求項の数2(全16頁)

(21) 出願番号 特願平4-108418

(22) 出願日 平成4年(1992)4月2日

(71) 出願人 000105419

コープケミカル株式会社

東京都千代田区一番町23番地3

(72) 発明者 古沢 隆資

新潟県南蒲原郡田上町田上内2983-12

(72) 発明者 藤崎 敏和

新潟県豊栄市早通南1-2-7

(72) 発明者 本間 興

埼玉県浦和市田島5-25-7

(72) 発明者 斉木 博

埼玉県浦和市大字太田窪2074-2

(72) 発明者 安藤 誠之助

東京都三鷹市井之頭3-24-1

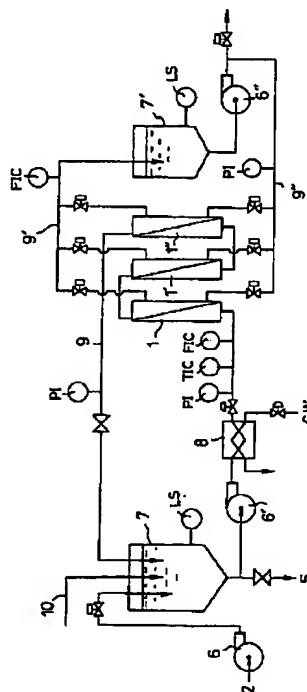
(74) 代理人 弁理士 秋元 輝雄

(54) 【発明の名称】 クロスフロー方式による濾過方法を用いる合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液あるいは更にアルミニウム塩を配合した均質混合液とアルカリ溶液より生成されるシリコン・マグネシウム複合体あるいはシリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体を、副生溶解質から目詰まりをおこすことなく濾過することにより、経済的に且つ効率良く分離・洗浄及び濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法を開発する。

【構成】 副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体あるいはシリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体を分離・洗浄及び濃縮するに当たり、クロスフロー方式による濾過方法を用い、レイノルズ数が50～5000の範囲に入るように設定して行う合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法により上記目的を達成できる。

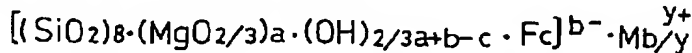


## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式（化1）で表される3-八面体型スメクタイトに類似した構造を有する合成膨潤性ケイ酸塩を合成するに当たり、該一般式の組成を満足するシリコン・マグネシウム比を有するケイ酸とマグネシウム塩の均質混合溶液と、アルカリ溶液よりシリコン・マグネシウム複合体を作り、副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体を分離・洗浄及び濃縮した後、該一般式の組成を満足する量の陽イオンおよび要すればフッ素イオンを添加して得たスラリーを100℃乃至10

\*至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕する該一般式で示される合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法において、該副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体を分離・洗浄及び濃縮するに当たり、クロスフロー方式による濾過方法を用い、レイノルズ数が50～5000の範囲に入るように設定して行うことを特徴とする合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法。

【化1】



（式中のa、b、cおよびyの値は $0 < a < 10$ 、 $0 < b \leq 1$ 、 $0 \leq c < 2/3a+b$ および $1 \leq y \leq 2$ とし、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンからなる群から選んだ少なくとも1個の陽イオンである）。

【請求項2】 該シリコン・マグネシウム複合体の平均粒子径の95%以上が200nm以下になるようにコントロールし、平均細孔径が0.1～5μmの濾過膜を用いることを特徴とする請求項1に記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は高品質の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法に関するものであり、更に詳しくはテクトロピー的性質を有するため化粧品、医薬品、塗料などの添加剤として極めて有用な合成膨潤性ケイ酸塩の製造において、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とアリカル溶液とからシリコン・マグネシウム複合体（コロイド粒子の凝集体）を作り、副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体を効率的に分離・洗浄及び※

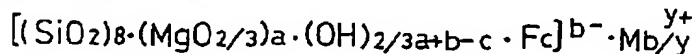
※濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 合成膨潤性ケイ酸塩およびその製造方法として、下記一般式（化2）で表される3-八面体型スメクタイトに類似した構造を有する合成膨潤性ケイ酸塩を合成するに当たり、該一般式の組成を満足するシリコン・マグネシウム比を有するケイ酸とマグネシウム塩の均質混合溶液と、アルカリ溶液よりシリコン・マグネシウム複合体を作り、副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体を分離・洗浄及び濃縮した後、該一般式の組成を満足する量の陽イオンおよび要すればフッ素イオンを添加して得たスラリーを100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕する該一般式で示される合成膨潤性ケイ酸塩およびその製造方法（特公昭61-12848号公報、特公昭63-6485号公報）が提案されている。

【0003】

【化2】



【0004】（式中のa、b、cおよびyの値は $0 < a < 10$ 、 $0 < b \leq 1$ 、 $0 \leq c < 2/3a+b$ および $1 \leq y \leq 2$ とし、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンからなる群から選んだ少なくとも1個の陽イオンである）。

【0005】 これらの方法で合成膨潤性ケイ酸塩を製造するには、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とアルカリ溶液より生成されるシリコン・マグネシウム複合体（コロイド粒子の凝集体）を副生溶解質から濾過することにより分離・洗浄及び濃縮する必要があり、効率よく、ほぼ完全に副生溶解質を除去することが製品の合成膨潤性ケイ酸塩の品位およびコスト低減のうえから極めて重要である。また、濾過時、濃縮してシリコン・マグネシウム複合体の濃度を高めることは、後工程での装置の小型化及び乾燥コストの低減化のために必要である。このシリコン・マグネシウム複合体のコロイド粒子は凝

集しており、コロイド粒子の濾過に一般的に使われている限外濾過膜を使用して加圧または減圧によりシリコン・マグネシウム複合体と副生電解質を分離しようとする、と、濾過後、直ちに目詰まりをおこし、濾過及び洗浄が事実上できなくなり、頻繁に濾過膜を取り替える必要があった。

【0006】 その為、濾過膜の孔の径を大きくして、目詰まりを防止しようとする、シリコン・マグネシウム複合体まで濾過されてしまい、副生電解質の分離ができなくなるという問題が生じる。それで、実際はシリコン・マグネシウム複合体はコロイド粒子が凝集しているものである、ので、若干のロスを見逃して、その凝集物の大部分が捕集できるような孔径の濾過膜を使用して、濾過・洗浄を行うことになるが、この場合でもすぐに目詰まりをおこし、濾過・洗浄速度が大幅に低下するという問題が生じる。このため、シリコン・マグネシウム複合体

を副生溶解質から濾過することにより経済的に且つ効率良く分離・洗浄及び濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法の出現が望まれていた。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は上記の問題を解決し、ケイ酸マグネシウム塩の均質混合液とアルカリ溶液より生成されるシリコン・マグネシウム複合体を副生溶解質から、目詰まりをおこすことなく濾過することにより、経済的に且つ効率良く分離・洗浄及び濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法を提供することである。

【0008】

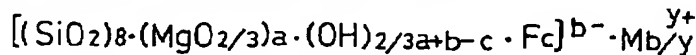
【課題を解決するための手段】上記の問題に鑑み本発明者等が鋭意研究した結果、上記の方法で合成膨潤性ケイ酸塩を製造するにあたり、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とアルカリ溶液より生成されるシリコン・マグネシウム複合体を副生溶解質から分離・洗浄及び濃縮する時、クロスフロー方式による濾過方法を用いて特定の条件下で濾過することにより、効率よくほぼ完全に分離・洗浄及び濃縮ができることを見出し、本発明を成すに\*

\*至った。

【0009】本発明の請求項1の発明は、下記一般式(化3)で表される3-八面体型スメクタイトに類似した構造を有する合成膨潤性ケイ酸塩を合成するに当たり、該一般式の組成を満足するシリコン・マグネシウム比を有するケイ酸とマグネシウム塩の均質混合溶液と、アルカリ溶液よりシリコン・マグネシウム複合体を作り、副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体を分離・洗浄及び濃縮した後、該一般式の組成を満足する量の陽イオンおよび要すればフッ素イオンを添加して得たスラリーを100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉碎する該一般式で示される合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法において、該副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体を分離・洗浄及び濃縮するに当たり、クロスフロー方式による濾過方法を用い、レイノルズ数が50~5000の範囲に入るように設定して行うことを特徴とする合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法である。

【0010】

【化3】



【0011】(式中のa、b、cおよびyの値は $0 < a < 10$ 、 $0 < b \leq 1$ 、 $0 \leq c < 2/3a + b$ および $1 \leq y \leq 2$ とし、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンからなる群から選んだ少なくとも1個の陽イオンである)。

【0012】本発明の請求項2の発明は、該シリコン・マグネシウム複合体の平均粒子径の95%以上が200nm以下になるようにコントロールし、平均細孔径が0.1~5μmの濾過膜を用いることを特徴とする請求項1に記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法である。

【0013】次に本発明で用いるクロスフロー方式による濾過方法を詳しく説明する。上記クロスフロー方式による濾過方法は、濾過対象原液を膜フィルターで直接濾過する一般的に行われている方法に対し、図1と図2に示したように、濾過対象原液2を濾過膜1の表面に平行に流しながら濾過液4を原液2とクロスする方向に濾過膜1を通してフローさせて濾過を行う方法である。図1は管状の濾過膜1の内部を原液2がフローし、濾過液4が外部へフローする場合の断面説明図であり、図2は管状の濾過膜1の外部を原液2がフローし、濾過液4が内部へフローする場合の断面説明図である。原液2中にはコロイド粒子3が含まれている。図3の(A)および(B)は濾過膜の1例であるセラミック製濾過膜の断面を示す説明図である。

【0014】図4はクロスフロー方式による濾過方法のシステムの一例を示す説明図である。原液2を原液フィードポンプ6により原液槽7に供給する。原液2は循環ポンプ6'により熱交換器8を経由して温度、圧力、流

量を制御して送液され、濾過膜1、1'、1"により順次濾過されライン9から原液槽7に循環され、そしてこれが繰り返される。濾過液はライン9'から濾液受槽7'に送液されてポンプ6"により次工程に送られる。ライン9"はドレインラインである。副生溶解質の分離、シリコン・マグネシウム複合体の濃縮が進んだとき、洗浄液10を原液槽7に供給して副生溶解質の分離を完全に行うと共に、水を分離し、シリコン・マグネシウム複合体の水スラリーの濃縮を進める。シリコン・マグネシウム複合体の分離・洗浄及び濃縮が完了したら濃縮液5を系外へ排出する。また、濾過膜1、1'、1"の詰まりを解消するため、濾液を上記と逆に流して逆洗を施すこともできるようになっている。

【0015】本発明においてクロスフロー方式による濾過方法によりシリコン・マグネシウム複合体と副生溶解質の濾過・分離を行う際、レイノルズ数が50~5000、望ましくは1000~5000になるように設定して濾過・分離を行うことが肝要である。シリコン・マグネシウム複合体のケーキ層が濾過膜上に生成するのを防止し、濾過速度の低下を防止し、且つ効率的に洗浄及び濃縮を行うのに、レイノルズ数を特定の値に設定することが必須の条件であることが、濾過・洗浄テストを繰り返すうちに明らかになった。レイノルズ数が50未満ではシリコン・マグネシウム複合体のケーキ層が濾過膜上に生成するのを防止できず、レイノルズ数が5000を超える場合は濾過システムの設定が難しくコスト高になる。また、シリコン・マグネシウム複合体の濃度を極度に下げればレイノルズ数を5000以上にすることもで



きるが、分離はよいが、濃縮の点からは不経済であり好ましくない。

【0016】クロスフロー方式による濾過方法が有効な理由は次のように考えられるが、これらの考えに限定されるものではないことは当然である。ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とカルカリ溶液より生成されるシリコン・マグネシウム複合体（コロイド粒子）は凝集しており、凝集物の内部に入り込んでいた副生溶解質の分離・洗浄を効率的に行うには、この凝集物をより小さく壊す必要がある。一方、濾過速度の低下を防止するには、小さく壊されたシリコン・マグネシウム複合体がフィルター上に堆積するのを防止し、そしてフィルター上に粘着性ある凝集塊が生成するのを防止して、フィルターが目詰まりするのを防止する必要がある。このような相反する問題を解決するために、クロスフロー方式による濾過方法でレイノルズ数を50以上、好ましくは1000以上の乱流域に設定し、濾過境界面で渦を生じさせることが極めて有効であるものと判断される。レイノルズ数が50～1000の場合は能力的には劣るが、やはり同様な効果が得られるものと考えられる。

【0017】しかし、実際の濾過・洗浄を行う場合は、出来るだけレイノルズ数が1000以上の状態でを行い、洗浄がほぼ完了したあとの濃縮段階で1000以下に下げるのが望ましい。

【0018】また本発明においては、上記のようにクロスフロー方式による濾過方法によりシリコン・マグネシウム複合体を副生溶解質から分離し、洗浄、濃縮した後、前記一般式の組成を満足する量の陽イオンおよび必要に応じてフッ素イオンを添加して得たスラリーを、100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕することにより前記一般式で示される合成膨潤性ケイ酸塩を得ることができるが、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を得るためには、即ち、合成膨潤性ケイ酸塩を水中に分散した分散液の透明度と粘性が高く、無機または有機塩の水溶液にも分散して高粘度を示すような合成膨潤性ケイ酸塩を得るためには、シリコン・マグネシウム複合体の粒子径の95%以上が200nm以下になるようにコントロールして、ケイ酸とマグネシウム塩の前記均質混合溶液と、アルカリ溶液よりシ

リコン・マグネシウム複合体を作ることが好ましいことを見いだした。

【0019】また、殆どが200nm以下の粒子径のコロイド粒子のクロスフロー方式による濾過において、濾過膜の細孔径は、コロイド粒子の大きさや凝集状態及び濾過時のレイノルズ数の値により最適値は異なるが、経済的な濾過速度で濾過を行い、そして濾過時のコロイド粒子の損失を少なくするためには、その細孔径を0.1～5μmの範囲に限定することが好ましいことが判った。

【0020】

【実施例】次に実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明の主旨を逸脱しないかぎり実施例に限定されるものではない。

（実施例1、比較例1～2）（クロスフロー方式による濾過方法を用いたシリコン・マグネシウム複合体の分離・洗浄・濃縮）

10リットルのビーカーに水4リットルを入れ、3号水ガラス（SiO<sub>2</sub> 28%、Na<sub>2</sub>O 9%、モル比3.22）860gを溶解し、12規定塩酸溶液250mlを攪拌しながら一度に加えてケイ酸溶液を得た。次に水1リットルに塩化マグネシウム六水和物一級試薬（純度98%）550gを溶解した溶液をケイ酸溶液に加えて調整したケイ酸-マグネシウム塩均質溶液を2規定水酸化ナトリウム溶液3.8リットル中に攪拌しながら5分間で滴下した。一定時間攪拌してシリコン・マグネシウム複合体（粒子径の90%以上が500nm以下）と副生溶解質から成るスラリー溶液を作り、それを用いて濾過・洗浄テストを行った。濾過・洗浄後、平均凝集粒子径を測定した。なお、濾過・洗浄テストにあたり、シリコン・マグネシウム複合体のスラリー溶液は1～10kgを使用し、洗浄用の純水はその5倍量を使用した。

【0021】クロスフロー方式による濾過システムは、図3に示したセラミック膜フィルターを用い、図4に示した日本ガイシ（株）のシステム〔クロスフロー濾過器（セラミック膜フィルター、チューブラータイプ、濾過面積400cm<sup>2</sup>）〕を使用した。結果を表1に示す。

【0022】

【表1】

濾過法	フィルター	濾過方法	濾過・洗浄速度 ( $l/m^2 \text{ hr}$ )	平均凝集粒径 ( $\mu m$ )
自然濾過法 比較例 1	濾布 (テトロン1310) (孔径 $2 \mu m$ )	溶液の自重	2	50
加圧濾過法 比較例 2	濾布 (テトロン1310) (孔径 $2 \mu m$ )	加圧 ( $2 \text{ kg/cm}^2$ )	9	50
本発明法 実施例 1	孔径 $2 \mu m$ のセラミック フィルター	クロスフロー (一種の加圧濾過)	100	5

【0023】比較例1の自然濾過法では、直径20cmの漏斗とテトロン製濾布を用いて、自重により濾過を行った。比較例2の加圧濾過法では、光信理化学(株)製のKS型加圧濾過器(濾過面積 $130 \text{ cm}^2$ )とテトロン製濾布を用いて、加圧して濾過を行った。本発明法による実施例1では濾過・洗浄時、レイノルズ数ができるだけ1000~5000になるようにして行った。表1より、比較例1の自然濾過法、比較例2の加圧濾過法とも平均凝集粒径が $50 \mu m$ であるのに対し、実施例1では $5 \mu m$ と1/10になり、凝集物が壊されていること、また濾過速度が他法に比べ、10倍以上速いことが判る。

【0024】洗浄後のシリコン・マグネシウム複合体の純水10%溶液の電気伝導度( $\text{mS/cm}$ )を測定したところ、次の値が得られた。

比較例 1	自然濾過法	5.76
比較例 2	加圧濾過法	4.05
実施例 1	本発明法	0.57

電気伝導度はシリコン・マグネシウム複合体中に含まれる副生溶解質濃度にほぼ比例するものと考えられるため、上記結果より、本発明の方法によれば凝集物を小さく\*

\*く壊して濾過・洗浄を行うため、シリコン・マグネシウム複合体の凝集物に内蔵されている副生溶解質は極めて除かれたいものであるにもかかわらず、副生溶解質の含量が減り、電気伝導度が一桁低くなったものと判断できる。このように、本発明の方法によれば、電気伝導度が低く、言い替えれば副生溶解質含量が少ないシリコン・マグネシウム複合体を得ることができるので、その結果、純度の高い高品質の膨潤性ケイ酸塩が得られるものと考えられる。

【0025】(実施例2)(クロスフロー方式による濾過方法を用いたシリコン・マグネシウム複合体の分離・洗浄・濃縮)

実施例1と同様な方法でシリコン・マグネシウム複合体を作ったが、その際、反応温度、反応時間、攪拌速度等を調整して、粒子の95%以上が $200 \text{ nm}$ 以下になるように調整した。得られたシリコン・マグネシウム複合体の副生溶解質からの分離・洗浄テストを実施例1と同様な条件で行った。濾過・洗浄後、平均凝集粒子径を測定した。結果を表2に示す。

【0026】

【表2】

濾過法	フィルター	濾過方法	濾過速度 ( $l/m^2 \text{ hr}$ )	平均凝集粒子径 ( $\mu m$ )
本発明法 実施例 2	孔径 $1 \mu m$ のセラミック フィルター	クロスフロー (一種の加圧濾過)	85	3

【0027】(実施例3~4、比較例3~4)(膨潤性ケイ酸塩の製造およびその物性値)

実施例1、2および比較例1、2で得られたシリコン・マグネシウム複合体 $1080 \text{ g}$ を濾過、及び十分に水洗した後、水酸化ナトリウム $3 \text{ g}$ を溶解した水溶液 $20 \text{ ml}$ を加えてスラリー状とし、オートクレーブに移し、4

$1 \text{ kg/cm}^2$ 、 $250^\circ \text{C}$ で3時間、水熱反応させた。冷却後、反応物を取りだし、 $80^\circ \text{C}$ で乾燥した後、搗潰機にて粉碎し、物性測定用の膨潤性ケイ酸塩のサンプルを得た。膨潤性ケイ酸塩の純水1%溶液を用い波長 $500 \text{ nm}$ の光による透過率(%)、同純水2%溶液の粘度( $\text{cp}$ )(B型粘度計、60回転/分の測定値)、陽イ

オン交換容量 (mg 当量/100 g) および同純水 1% \* 【0028】  
 溶液の pH を測定した。結果をまとめて表 3 に示す。 \* 【表 3】

	光透過率 (%) 純水 1% 溶液 波長 500 nm	粘度 (c p) 純水 2% 溶液	陽イオン交換容量 mg 当量/100 g	pH 純水 1% 溶液
自然濾過法品 比較例 3	56.9	$1.6 \times 10^3$	97	10.3
加圧濾過法品 比較例 4	67.1	$2.2 \times 10^3$	98	10.4
本発明濾過品 実施例 3	94.9	$9.0 \times 10^3$	101	10.5
本発明濾過品 実施例 4	97.2	$17.5 \times 10^3$	101	10.5

【0029】表 3 に示した結果より、膨潤性ケイ酸塩の重要な物性である透過率及び粘度について、実施例 1、2 で得られたシリコン・マグネシウム複合体を用いて作られた膨潤性ケイ酸塩（実施例 3、4）は、比較例 1、2 で得られたシリコン・マグネシウム複合体を用いて作られた膨潤性ケイ酸塩（比較例 3、4）に比較して高い値を示す。しかも実施例 2 のようにシリコン・マグネシウム複合体の 95% 以上の粒径を 200 nm 以下にコントロールすると、それを用いて作られた膨潤性ケイ酸塩（実施例 4）の光透過率は高品質の一つの目標である 95% 以上になり、粘度も約 2 倍に高まることが判る。

【0030】（実施例 5～6、比較例 5～6）（膨潤性ケイ酸塩の物性値）

実施例 3、4 および比較例 3、4 で得られた物性測定用の膨潤性ケイ酸塩サンプルの 2% 水溶液を調整し、そこへ無機又は有機塩類を 0.5 或は 2% 相当量添加し、スターラーでかきまぜて粘度測定用溶液を調整した。二層に分離しない均質な高粘性液が得られた場合は、粘度 (c p) (B 型粘度計、60 回転/分の測定値) を測定した。結果をまとめて表 4 に示す。表 4 より、二層分離

せず、均質な高粘性液を生ずるのは実施例 3、4 で得られた膨潤性ケイ酸塩の場合（実施例 5 および実施例 6）であり、しかも実施例 2 のようにシリコン・マグネシウム複合体の 95% 以上の粒径を 200 nm 以下にコントロールすると、それを用いて作られた膨潤性ケイ酸塩は分散性が非常によくなる（実施例 6）ことが判る。比較例 3、4 で得られた膨潤性ケイ酸塩の場合は、二層に分離してしまい、均質な高粘性液が得られなかった（比較例 5 および比較例 6）。

【0031】このように無機又は有機塩類の水溶液に分散して、二層分離せず、均質な高粘性液を生ずる物性は、膨潤性ケイ酸塩を化粧品、医薬品、塗料などへ、チクソトロピーの性質を付与する添加剤として適用する時の極めて重要な物性である。なお、上記のような無機または有機塩の水溶液にも分散して高粘性を示す性質は、市販の合成膨潤性ケイ酸塩にもいくらか認められるものもあるが、本発明の方法により製造された膨潤性ケイ酸塩のように分散性の大きいものは他に見られなかった。

【0032】

【表 4】

種 類	濃 度 (%)	自然濾過法品 比較例 5	加圧濾過法品 比較例 6	本発明濾過品 実施例 5	本発明濾過品 実施例 6
塩化ナトリウム	0.5 2	二層分離 〃	二層分離 〃	1,700 880	1,800 890
塩化カルcium	0.5 2	二層分離 〃	二層分離 〃	2,100 二層分離	2,200 840
塩化アンモニウム	0.5 2	二層分離 〃	二層分離 〃	490 二層分離	320 460
硫酸アンモニウム	0.5 2	二層分離 〃	二層分離 〃	760 460	1,300 580
EDTA-2Na	0.5 2	二層分離 〃	二層分離 〃	740 二層分離	680 550

## 【0033】

【発明の効果】本発明は、合成膨潤性ケイ酸塩を製造するにあたり、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とアルカリ溶液より生成されるシリコン・マグネシウム複合体を副生溶解質から分離・洗浄及び濃縮する時、クロスフロー方式による濾過方法でレイノルズ数が50～5000の範囲に入るように設定して行くと、濾過膜の目詰まりをおこすことなく濾過でき、経済的に且つ効率良くシリコン・マグネシウム複合体の分離・洗浄及び濃縮を行うことができ、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造できる。更に、シリコン・マグネシウム複合体の粒子径の95%以上を200nm以下になるようにコントロールし、濾過膜の細孔径を0.1～5μmに限定して、シリコン・マグネシウム複合体の分離・洗浄及び濃縮を行う

と、一層経済的に且つ効率良くシリコン・マグネシウム複合体の分離・洗浄及び濃縮を行うことができ、より高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造できる。本発明の方法により、化粧品、医薬品、塗料などへ、チクソトロピー的性質を付与する添加剤として極めて有用な高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を安価に製造することができ、産業上の利用価値は大きい。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】 クロスフロー方式濾過の説明図である。

【図2】 他のクロスフロー方式濾過の説明図である。

【図3】 (A)、(B)はセラミック製濾過膜の断面説明図である。

【図4】 クロスフロー方式濾過方法のシステムの一例を示す説明図である。

## 【符号の説明】

P I 圧力計

T I C 温度指示制御計

F I C 流量指示制御計

L S 液面計

1、1'、1" 濾過膜

2 原液

3 コロイド粒子

4 濾過液

5 濃縮液

6、6'、6" ポンプ

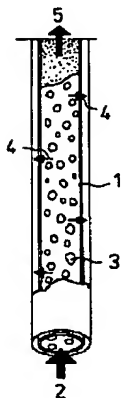
7、7' タンク

8 熱交換器

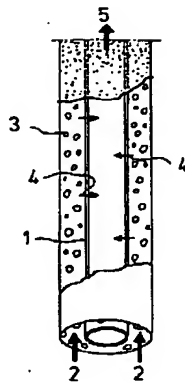
9、9'、9" パイプライン

10 洗浄液

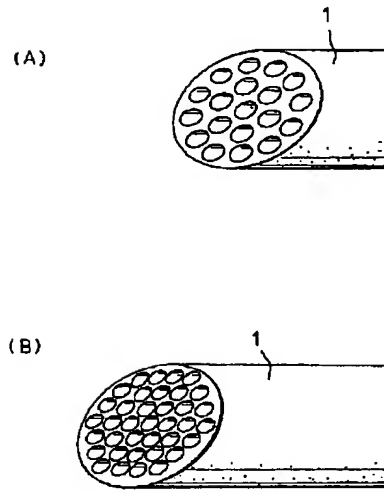
【図1】



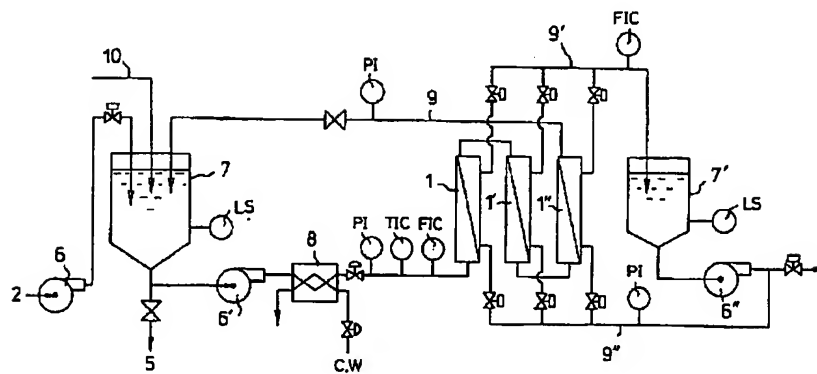
【図2】



【図3】



【図4】



## 【手続補正書】

【提出日】平成5年4月14日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【書類名】明細書

【発明の名称】クロスフロー方式による濾過方法を用いる合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 3-八面体型スメクタイトに類似した構造を有する合成膨潤性ケイ酸塩を合成するに当たり、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合溶液あるいは更にアルミニウム塩を配合した均質混合溶液と、アルカリ溶液よりシリコン・マグネシウム複合体あるいはシリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体を作り、副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体あるいは該シリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体を分離・洗浄及び濃縮した後、陽イオンおよび/又はリチウムイオン、および要すればフッ素イオンを添加して得たスラリーを100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕する合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法において、該副生溶解質を除去して該シリコン・マグネシウム複合体あるいは該シリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体を分離・洗浄及び濃縮するに当たり、クロスフロー方式による濾過方法を用い、レイノルズ数が50～5000の範囲に入るように設定して行うことを特徴とする合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法。

【請求項2】 合成膨潤性ケイ酸塩が下記一般式(化1)で表されることを特徴とする請求項1記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法。

【化1】  $[(\text{SiO}_2)_8 \cdot (\text{MgO}_2/3)_a \cdot (\text{OH})_{2/3a+b-c} \cdot \text{Fc}]^{b-} \cdot \text{M}_b/y^{y+}$  (式中のa、b、cおよびyの値は $0 < a < 10$ 、 $0 < b \leq 1$ 、 $0 \leq c < 2/3a+b$ および $1 \leq y \leq 2$ とし、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンからなる群から選んだ少なくとも1個の陽イオンである。)

【請求項3】 合成膨潤性ケイ酸塩が下記一般式(化2)で表されることを特徴とする請求項1記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法。

【化2】  $[\text{Si}_8(\text{Mg}_{6-x-y}\text{Li}_x\text{Na}_y)\text{O}_{20}\{(\text{OH})_{4-z}\text{F}_z\}]^{(x+y)-} \cdot (\text{X}+\text{Y})\text{M}^+$

(式中のX、Y、Xの値は $0 \leq X < 2$ 、 $0 \leq Y \leq 2$ 、 $0 < X+Y < 2$ 、 $0 \leq Z < 4$ とし、M<sup>+</sup>はアルカリ金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンなどの1価陽イオンである。)

【請求項4】 該シリコン・マグネシウム複合体あるいは該シリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体の平均粒子径の95%以上が200nm以下になるようにコントロールし、平均細孔径が0.1～5μmの濾過膜を用いることを特徴とする請求項1に記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は高品質の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法に関するものであり、更に詳しくはテクソトロピー的性質を有するため化粧品、医薬品、塗料などの添加剤として極めて有用な合成膨潤性ケイ酸塩の製

造において、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液あるいは更にアルミニウム塩を配合した均質混合溶液とアルカリ溶液とからシリコン・マグネシウム複合体あるいはシリコン・マグネシウム・アルミニウム複合体(コロイド粒子の凝集体、以下、コロイド複合体と略す)を作り、副生溶解質を除去して該コロイド複合体を効率的に分離・洗浄及び濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 合成膨潤性ケイ酸塩およびその製造方法として、下記一般式(化3)あるいは(化4)などで表される3-八面体型スメクタイトに類似した構造を有する合成膨潤性ケイ酸塩を合成するに当たり、該一般式の組成を満足するシリコン・マグネシウム比を有するケイ酸とマグネシウム塩の均質混合溶液と、アルカリ溶液よりコロイド複合体を作り、副生溶解質を除去して該コロイド複合体を分離・洗浄及び濃縮した後、該一般式の組成を満足する量の陽イオンおよび/又はリチウムイオンおよび要すればフッ素イオンを添加して得たスラリーを100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕する該一般式で示される合成膨潤性ケイ酸塩およびその製造方法(特公昭61-12848号公報、特公昭63-6485号公報、特公昭63-6486号公報)が提案されている。

【0003】

【化3】  $[(\text{SiO}_2)_8 \cdot (\text{MgO}_2/3)_a \cdot (\text{OH})_{2/3a+b-c} \cdot \text{Fc}]^{b-} \cdot \text{M}_b/y^{y+}$

【0004】 (式中のa、b、cおよびyの値は $0 < a < 10$ 、 $0 < b \leq 1$ 、 $0 \leq c < 2/3a+b$ および $1 \leq y \leq 2$ とし、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンからなる群から選んだ少なくとも1個の陽イオンである。)

【0005】

【化4】  $[\text{Si}_8(\text{Mg}_{6-x-y}\text{Li}_x\text{Na}_y)\text{O}_{20}\{(\text{OH})_{4-z}\text{F}_z\}]^{(x+y)-} \cdot (\text{X}+\text{Y})\text{M}^+$

【0006】 (式中のX、Y、Xの値は $0 \leq X < 2$ 、 $0 \leq Y \leq 2$ 、 $0 < X+Y < 2$ 、 $0 \leq Z < 4$ とし、M<sup>+</sup>はアルカリ金属イオン、アンモニウムイオンおよびアミンなどの1価陽イオンである。)

【0007】 これらの方法で合成膨潤性ケイ酸塩を製造するには、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とアルカリ溶液より生成されるコロイド複合体(コロイド粒子の凝集体)を副生溶解質から濾過することにより分離・洗浄及び濃縮する必要があり、効率よく、ほぼ完全に副生溶解質を除去することが製品の合成膨潤性ケイ酸塩の品位およびコスト低減のうえから極めて重要である。また、濾過時、濃縮してコロイド複合体の濃度を高めることは、後工程での装置の小型化及び乾燥コストの低減化のために必要である。このコロイド複合体のコロイド粒

子は凝集しており、コロイド粒子の濾過に一般的に使われている限外濾過膜を使用して加圧または減圧によりコロイド複合体と副生電解質を分離しようとすると、濾過後、直ちに目詰まりをおこし、濾過及び洗浄が事実上できなくなり、頻繁に濾過膜を取り替える必要があった。

【0008】その為、濾過膜の孔の径を大きくして、目詰まりを防止しようとすると、コロイド複合体まで濾過されてしまい、副生電解質の分離ができなくなるという問題が生じる。それで、実際はコロイド複合体はコロイド粒子が凝集しているものであるため、若干のロスを見捨て、その凝集物の大部分が捕集できるような孔径の濾過膜を使用して、濾過・洗浄を行うことになるが、この場合でもすぐに目詰まりをおこし、濾過・洗浄速度が大幅に低下するという問題が生じる。このため、コロイド複合体を副生溶解質から濾過することにより経済的に且つ効率良く分離・洗浄及び濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法の出現が望まれていた。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は上記の問題を解決し、ケイ酸マグネシウム塩の均質混合液とアルカリ溶液より生成されるコロイド複合体を副生溶解質から、目詰まりをおこすことなく濾過することにより、経済的に且つ効率良く分離・洗浄及び濃縮して、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造する方法を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記の問題に鑑み本発明者等が鋭意研究した結果、上記の方法で合成膨潤性ケイ酸塩を製造するにあたり、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液あるいは更にアルミニウム塩を配合した均質混合溶液とアルカリ溶液より生成されるコロイド複合体を副生溶解質から分離・洗浄及び濃縮する時、クロスフロー方式による濾過方法を用いて特定の条件下で濾過することにより、効率よくほぼ完全に分離・洗浄及び濃縮ができることを見出し、本発明を成すに至った。

【0011】本発明の請求項1の発明は、3-八面体型スメクタイトに類似した構造を有する合成膨潤性ケイ酸塩を合成するに当たり、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合溶液あるいは更にアルミニウム塩を配合した均質混合溶液と、アルカリ溶液よりコロイド複合体を作り、副生溶解質を除去して該コロイド複合体を分離・洗浄及び濃縮した後、陽イオンおよび/又はリチウムイオン、および要すればフッ素イオンを添加して得たスラリーを100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕する合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法において、該副生溶解質を除去して該コロイド複合体を分離・洗浄及び濃縮するに当たり、クロスフロー方式による濾過方法を用い、レイノルズ数が50～5000の範囲に入るように設定して行うことを特徴とする合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法である。

【0012】本発明の請求項2の発明は、合成膨潤性ケイ酸塩が前記一般式(化3)で表されることを特徴とする請求項1記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法である。

【0013】本発明の請求項3の発明は、合成膨潤性ケイ酸塩が前記一般式(化4)で表されることを特徴とする請求項1記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法である。

【0014】本発明の請求項4の発明は、該コロイド複合体の平均粒子径の95%以上が200nm以下になるようにコントロールし、平均細孔径が0.1～5μmの濾過膜を用いることを特徴とする請求項1に記載の合成膨潤性ケイ酸塩の製造方法である。

【0015】次に本発明で用いるクロスフロー方式による濾過方法を詳しく説明する。上記クロスフロー方式による濾過方法は、濾過対象原液を膜フィルターで直接濾過する一般的に行われている方法に対し、図1と図2に示したように、濾過対象原液2を濾過膜1の表面に平行に流しながら濾過液4を原液2とクロスする方向に濾過膜1を通してフローさせて濾過を行う方法である。図1は管状の濾過膜1の内部を原液2がフローし、濾過液4が外部へフローする場合の断面説明図であり、図2は管状の濾過膜1の外部を原液2がフローし、濾過液4が内部へフローする場合の断面説明図である。原液2中にはコロイド粒子3が含まれている。図3の(A)および(B)は濾過膜の1例であるセラミック製濾過膜の断面を示す説明図である。

【0016】図4はクロスフロー方式による濾過方法のシステムの一例を示す説明図である。原液2を原液フィードポンプ6により原液槽7に供給する。原液2は循環ポンプ6'により熱交換器8を経由して温度、圧力、流量を制御して送液され、濾過膜1、1'、1"により順次濾過されライン9から原液槽7に循環され、そしてこれが繰り返される。濾過液はライン9'から濾液受槽7'に送液されてポンプ6"により次工程に送られる。ライン9"はドレインラインである。副生溶解質の分離、コロイド複合体の濃縮が進んだとき、洗浄液10を原液槽7に供給して副生溶解質の分離を完全に行うと共に、水を分離し、コロイド複合体の水スラリーの濃縮を進める。コロイド複合体の分離・洗浄及び濃縮が完了したら濃縮液5を系外へ排出する。また、濾過膜1、1'、1"の詰まりを解消するため、濾液を上記と逆に流して逆洗を施すこともできるようになっている。

【0017】本発明においてクロスフロー方式による濾過方法によりコロイド複合体と副生溶解質の濾過・分離を行う際、レイノルズ数が50～5000、望ましくは1000～5000になるように設定して濾過・分離を行うことが肝要である。コロイド複合体のケーキ層が濾過膜上に生成するのを防止し、濾過速度の低下を防止し、且つ効率的に洗浄及び濃縮を行うのに、レイノルズ



数を特定の値に設定することが必須の条件であることが、濾過・洗浄テストを繰り返すうちに明らかになった。レイノルズ数が50未満ではコロイド複合体のケーキ層が濾過膜上に生成するのを防止できず、レイノルズ数が5000を超える場合は濾過システムの設定が難しくコスト高になる。また、コロイド複合体の濃度を極度に下げればレイノルズ数を5000以上にすることもできるが、分離はよいが、濃縮の点からは不経済であり好ましくない。

【0018】クロスフロー方式による濾過方法が有効な理由は次のように考えられるが、これらの考えに限定されるものではないことは当然である。ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液とカルカリ溶液より生成されるコロイド複合体（コロイド粒子）は凝集しており、凝集物の内部に入り込んでいる副生溶解質の分離・洗浄を効率的に行うには、この凝集物をより小さく壊す必要がある。一方、濾過速度の低下を防止するには、小さく壊されたコロイド複合体がフィルター上に堆積するのを防止し、そしてフィルター上に粘着性ある凝集塊が生成するのを防止して、フィルターが目詰まりするのを防止する必要がある。このような相反する問題を解決するために、クロスフロー方式による濾過方法でレイノルズ数を50以上、好ましくは1000以上の乱流域に設定し、濾過境界面で渦を生じさせることが極めて有効であるものと判断される。レイノルズ数が50～1000の場合は能力的には劣るが、やはり同様な効果が得られるものと考えられる。

【0019】しかし、実際の濾過・洗浄を行う場合は、出来るだけレイノルズ数が1000以上の状態で、洗浄がほぼ完了したあとの濃縮段階で1000以下に下げるのが望ましい。

【0020】また本発明においては、上記のようにクロスフロー方式による濾過方法によりコロイド複合体を副生溶解質から分離し、洗浄、濃縮した後、前記一般式の組成を満足する量の陽イオンおよび／又はリチウムイオンおよび必要に応じてフッ素イオンを添加して得たスラリーを、100℃乃至350℃の条件下で水熱反応を行い、次いで反応生成物を乾燥・粉砕することにより前記一般式で示される合成膨潤性ケイ酸塩を得ることができるが、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を得るためには、即ち、合成膨潤性ケイ酸塩を水中に分散した分散液の透明度と粘性が高く、無機または有機塩の水溶液にも分散し

て高粘度を示すような合成膨潤性ケイ酸塩を得るためには、コロイド複合体の粒子径の95%以上が200nm以下になるようにコントロールして、ケイ酸とマグネシウム塩の前記均質混合溶液と、アルカリ溶液よりコロイド複合体を作ることが好ましいことを見いだした。

【0021】また、殆どが200nm以下の粒子径のコロイド粒子のクロスフロー方式による濾過において、濾過膜の細孔径は、コロイド粒子の大きさや凝集状態及び濾過時のレイノルズ数の値により最適値は異なるが、経済的な濾過速度で濾過を行い、そして濾過時のコロイド粒子の損失を少なくするためには、その細孔径を0.1～5μmの範囲に限定することが好ましいことが判った。

【0022】

【実施例】次に実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明の主旨を逸脱しないかぎり実施例に限定されるものではない。

（実施例1、比較例1～2）（クロスフロー方式による濾過方法を用いたコロイド複合体の分離・洗浄・濃縮）  
10リットルのビーカーに水4リットルを入れ、3号水ガラス（SiO<sub>2</sub> 28%、Na<sub>2</sub>O 9%、モル比3.22）860gを溶解し、12規定塩酸溶液250mlを攪拌しながら一度に加えてケイ酸溶液を得た。次に水1リットルに塩化マグネシウム六水和物一般試薬（純度98%）550gを溶解した溶液をケイ酸溶液に加えて調整したケイ酸-マグネシウム塩均質溶液を2規定水酸化ナトリウム溶液3.0リットル中に攪拌しながら5分間で滴下した。一定時間攪拌してコロイド複合体（粒子径の90%以上が500nm以下）と副生溶解質から成るスラリー溶液を作り、それを用いて濾過・洗浄テストを行った。濾過・洗浄後、平均凝集粒子径を測定した。なお、濾過・洗浄テストにあたり、コロイド複合体のスラリー溶液は1～10kgを使用し、洗浄用の純水はその5倍量を使用した。

【0023】クロスフロー方式による濾過システムは、図3に示したセラミック膜フィルターを用い、図4に示した日本ガイシ（株）のシステム〔クロスフロー濾過器（セラミック膜フィルター、チューブラータイプ、濾過面積400cm<sup>2</sup>）〕を使用した。結果を表1に示す。

【0024】

【表1】

濾過法	フィルター	濾過方法	濾過・洗浄速度 ( $l/m^2 \text{ hr}$ )	平均凝集粒径 ( $\mu m$ )
自然濾過法 比較例 1	濾布 (テトロン 1310) (孔径 $2 \mu m$ )	溶液の自重	2	50
加圧濾過法 比較例 2	濾布 (テトロン 1310) (孔径 $2 \mu m$ )	加圧 ( $2 \text{ kg/cm}^2$ )	9	50
本発明法 実施例 1	孔径 $2 \mu m$ のセラミック フィルター	クロスフロー (一種の加圧濾過)	100	5

【0025】比較例1の自然濾過法では、直径20cmの漏斗とテトロン製濾布を用いて、自重により濾過を行った。比較例2の加圧濾過法では、光信理化学(株)製のKS型加圧濾過器(濾過面積 $130 \text{ cm}^2$ )とテトロン製濾布を用いて、加圧して濾過を行った。本発明法による実施例1では濾過・洗浄時、レイノルズ数ができるだけ1000~5000になるようにして行った。表1より、比較例1の自然濾過法、比較例2の加圧濾過法とも平均凝集粒径が $50 \mu m$ であるのに対し、実施例1では $5 \mu m$ と1/10になり、凝集物が壊されていること、また濾過速度が他法に比べ、10倍以上速いことが判る。

【0026】洗浄後のコロイド複合体の純水10%溶液の電気伝導度( $\text{mS/cm}$ )を測定したところ、次の値が得られた。

比較例 1	自然濾過法	5.76
比較例 2	加圧濾過法	4.05
実施例 1	本発明法	0.57

電気伝導度はコロイド複合体中に含まれる副生溶解質濃度にほぼ比例するものと考えられるため、上記結果よ

り、本発明の方法によれば凝集物を小さく壊して濾過・洗浄を行うため、コロイド複合体の凝集物に内蔵されている副生溶解質は極めて除かれがたいものであるにもかかわらず、副生溶解質の含量が減り、電気伝導度が一桁低くなったものと判断できる。このように、本発明の方法によれば、電気伝導度が低く、言い替えれば副生溶解質含量が少ないコロイド複合体を得ることができるので、その結果、純度の高い高品質の膨潤性ケイ酸塩が得られるものと考えられる。

【0027】(実施例2)(クロスフロー方式による濾過方法を用いたコロイド複合体の分離・洗浄・濃縮)実施例1と同様な方法でコロイド複合体を作ったが、その際、反応温度、反応時間、攪拌速度等を調整して、粒子の95%以上が $200 \text{ nm}$ 以下になるように調整した。得られたコロイド複合体の副生溶解質からの分離・洗浄テストを実施例1と同様な条件で行った。濾過・洗浄後、平均凝集粒子径を測定した。結果を表2に示す。

【0028】

【表2】

濾過法	フィルター	濾過方法	濾過速度 ( $l/m^2 \text{ hr}$ )	平均凝集粒子径 ( $\mu m$ )
本発明法 実施例2	孔径1 $\mu m$ のセラミック フィルター	クロスフロー (一種の加圧濾過)	85	3

【0029】(実施例3～4、比較例3～4) (膨潤性ケイ酸塩の製造およびその物性値)  
 実施例1、2および比較例1、2で得られたコロイド複合体1080gを濾過、及び十分に水洗した後、水酸化リチウム1水和物  $[Li(OH) \cdot H_2O]$  20gを溶解した水溶液100mlを加えてスラリー状とし、オートクレーブに移し、41kg/cm<sup>2</sup>、250℃で3時間、水熱反応させた。冷却後、反応物を取りだし、80℃で乾燥した後、擂潰機にて粉碎し、物性測定用の膨潤\*

\*性ケイ酸塩のサンプルを得た。膨潤性ケイ酸塩の純水1%溶液を用い波長500nmの光による透過率(%)、同純水2%溶液の粘度(cP) (B型粘度計、60回転/分の測定値)、陽イオン交換容量(mg当量/100g)および同純水1%溶液のpHを測定した。結果をまとめて表3に示す。

【0030】

【表3】

	光透過率(%) 純水1%溶液 波長500nm	粘度 (cP) 純水2%溶液	陽イオン交換容量 mg当量/100g	pH 純水1% 溶液
自然濾過法品 比較例3	56.9	$1.6 \times 10^2$	97	10.3
加圧濾過法品 比較例4	67.1	$2.2 \times 10^2$	98	10.4
本発明濾過品 実施例3	94.9	$9.0 \times 10^2$	101	10.5
本発明濾過品 実施例4	97.2	$17.5 \times 10^2$	101	10.5

【0031】表3に示した結果より、膨潤性ケイ酸塩の重要な物性である透過率及び粘度について、実施例1、2で得られたコロイド複合体を用いて作られた膨潤性ケイ酸塩(実施例3、4)は、比較例1、2で得られたコ

ロイド複合体を用いて作られた膨潤性ケイ酸塩(比較例3、4)に比較して高い値を示す。しかも実施例2のようにコロイド複合体の95%以上の粒径を200nm以下にコントロールすると、それを用いて作られた膨潤性

ケイ酸塩（実施例 4）の光透過率は高品質の一つの目標である 95% 以上になり、粘度も約 2 倍に高まることが判る。

【0032】（実施例 5～6、比較例 5～6）（膨潤性ケイ酸塩の物性値）

実施例 3、4 および比較例 3、4 で得られた物性測定用の膨潤性ケイ酸塩サンプルの 2% 水溶液を調整し、そこへ無機又は有機塩類を 0.5 或は 2% 相当量添加し、スターラーでかきまぜて粘度測定用溶液を調整した。二層に分離しない均質な高粘性液が得られた場合は、粘度（cP）（B 型粘度計、60 回転／分の測定値）を測定した。結果をまとめて表 4 に示す。表 4 より、二層分離せず、均質な高粘性液を生ずるのは実施例 3、4 で得られた膨潤性ケイ酸塩の場合（実施例 5 および実施例 6）であり、しかも実施例 2 のようにコロイド複合体の 95% 以上の粒径を 200 nm 以下にコントロールすると、それを用いて作られた膨潤性ケイ酸塩は分散性が非常に

よくなる（実施例 6）ことが判る。比較例 3、4 で得られた膨潤性ケイ酸塩の場合は、二層に分離してしまい、均質な高粘性液が得られなかった（比較例 5 および比較例 6）。

【0033】このように無機又は有機塩類の水溶液に分散して、二層分離せず、均質な高粘性液を生ずる物性は、膨潤性ケイ酸塩を化粧品、医薬品、塗料などへ、チクソトロピー的性質を付与する添加剤として適用する時の極めて重要な物性である。なお、上記のような無機または有機塩の水溶液にも分散して高粘性を示す性質は、市販の合成膨潤性ケイ酸塩にもいくらか認められるものもあるが、本発明の方法により製造された膨潤性ケイ酸塩のように分散性の大きいものは他に見られなかった。

【0034】

【表 4】

種 類	濃 度 (%)	自然濾過法品 比較例 5	加圧濾過法品 比較例 6	本発明濾過品 実施例 5	本発明濾過品 実施例 6
塩化ナトリウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	1,700 880	1,800 880
塩化カルcium	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	2,100 二層分離	2,200 840
塩化アンモニウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	480 二層分離	320 460
硫酸アンモニウム	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	760 460	1,300 580
EDTA-2Na	0.5 2	二層分離 "	二層分離 "	740 二層分離	680 550

## 【0035】

【発明の効果】本発明は、合成膨潤性ケイ酸塩を製造するにあたり、ケイ酸とマグネシウム塩の均質混合液あるいは更にアルミニウム塩を配合した均質混合溶液と、アルカリ溶液より生成されるコロイド複合体を副生溶解質から分離・洗浄及び濃縮する時、クロスフロー方式による濾過方法でレイノルズ数が50～5000の範囲に入るように設定して行くと、濾過膜の目詰まりをおさすことなく濾過でき、経済的に且つ効率良くコロイド複合体の分離・洗浄及び濃縮を行うことができ、高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造できる。更に、コロイド複合体の粒子径の95%以上を200nm以下になるようにコントロールし、濾過膜の細孔径を0.1～5μmに限定して、コロイド複合体の分離・洗浄及び濃縮を行うと、一

層経済的に且つ効率良くコロイド複合体の分離・洗浄及び濃縮を行うことができ、より高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を製造できる。本発明の方法により、化粧品、医薬品、塗料などへ、チクソトロピー的性質を付与する添加剤として極めて有用な高品質の合成膨潤性ケイ酸塩を安価に製造することができ、産業上の利用価値は大きい。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】 クロスフロー方式濾過の説明図である。

【図2】 他のクロスフロー方式濾過の説明図である。

【図3】 (A)、(B)はセラミック製濾過膜の断面説明図である。

【図4】 クロスフロー方式濾過方法のシステムの一例を示す説明図である。

## 【符号の説明】

PI 圧力計  
TIC 温度指示制御計  
FIC 流量指示制御計  
LS 液面計  
1、1'、1" 濾過膜  
2 原液  
3 コロイド粒子

4 濾過液  
5 濃縮液  
6、6'、6" ポンプ  
7、7' タンク  
8 熱交換器  
9、9'、9" パイプライン  
10 洗浄液